

12 **EUROPÄISCHE PATENTANMELDUNG**

21 Anmeldenummer: 79104241.9

53 Int. Cl.³: **C 07 C 127/19**
C 07 C 149/437, A 01 N 47/34
//C07C123/00

22 Anmeldetag: 31.10.79

20 Priorität: 15.11.78 DE 2849558

43 Veröffentlichungstag der Anmeldung:
28.05.80 Patentblatt 80/11

60 Veröffentlichungstag des später
veröffentlichten Recherchenberichts: 03.09.80

64 Benannte Vertragsstaaten:
BE CH DE FR GB IT NL

71 Anmelder: BAYER AG
Zentralbereich Patente, Marken und Lizenzen
D-5090 Leverkusen 1, Bayerwerk(DE)

72 Erfinder: Fest, Christa, Dr.
Im Johannistal 20
D-5600 Wuppertal 1(DE)

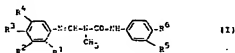
73 Erfinder: Kraus, Peter, Dr.
Düsseldorferstrasse 43
D-5000 Köln 80(DE)

74 Erfinder: Scheinpfug, Hans, Dr.
Am Thelenhof 15
D-5090 Leverkusen(DE)

54 Substituierte Phenyliminomethyl-harnstoffe, Verfahren zu ihrer Herstellung und ihre Verwendung als Pflanzenbakterizide.

57 Die Erfindung betrifft neue substituierte Phenyliminomethylharnstoffe, ein Verfahren zu ihrer Herstellung sowie ihre Verwendung als Pflanzenbakterizide.

Die neuen Verbindungen der Formel



in welcher R¹ bis R⁶ die in der Beschreibung angegebene Bedeutung besitzen, werden erhalten, wenn man substituierte Phenyl-formamidine mit substituierten Phenylisocyanaten gegebenenfalls in Gegenwart eines inerten Verdünnungsmittels umsetzt.

Die erfindungsgemäßen Wirkstoffe weisen eine starke mikrobiologische Wirkung auf und können zur Bekämpfung von unerwünschten Mikroorganismen praktisch eingesetzt werden. Die Wirkstoffe sind für den Gebrauch als Pflanzenschutzmittel geeignet.



Europäisches
Patentamt

EUROPÄISCHER RECHERCHENBERICHT

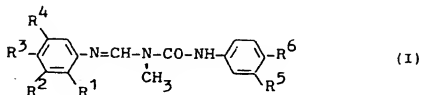
Nummer der Anmeldung

0011182

EP 79 10 4241

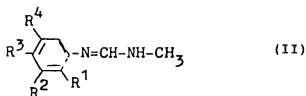
EINSCHLÄGIGE DOKUMENTE			KLASSIFIKATION DER ANMELDUNG (Int. Cl.)
Kategorie	Kennzeichnung des Dokuments mit Angabe, soweit erforderlich, der maßgeblichen Teile	beinhaltet Anspruch	
D ₁ X	DE - A - 2 202 034 (CIBA-GEIGY) * gesamtes Dokument *	1-6	C 07 C 127/19 C 07 C 149/437 A 01 N 47/34 //C 07 C 123/00
			RECHERCHIERTE SACHGEBIETE (Int. Cl.)
			A 01 N 47/34 C 07 C 127/19 C 07 C 149/437
			KATEGORIE DER GENANNTEN DOKUMENTE
			X: von besonderer Bedeutung A: technologischer Hintergrund O: nichtschriftliche Offenbarung P: Zwischenliteratur T: der Erfindung zugrunde liegende Theorien oder Grundsätze E: kollidierende Anmeldung D: In der Anmeldung angeführtes Dokument L: aus andern Gründen angeführtes Dokument A: Mitglied der gleichen Patentfamilie, übereinstimmendes Dokument
<input checked="" type="checkbox"/> Der vorliegende Recherchenbericht wurde für alle Patentansprüche erstellt.			
Recherchenort	Abschlußdatum der Recherche		Prüfer
Berlin	20-05-1980		STOOS

Es wurden nun neue Phenyliminomethyl-harnstoffe der Formel



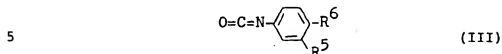
gefunden, in welcher

- 5 R^1 für Halogenalkyl und - mit der Maßgabe, daß R^3 für Wasserstoff steht - auch für Alkyl oder Halogen steht,
 R^2 für Wasserstoff oder zusammen mit R^1 für Alkandiyl steht,
 R^3 für Wasserstoff und - mit der Maßgabe, daß R^1 für Halogenalkyl steht - auch für Halogen steht,
- 10 R^4 für Wasserstoff, Alkyl und - mit der Maßgabe, daß R^3 für Wasserstoff steht - auch für Halogen steht,
 R^5 für Wasserstoff oder Halogen steht, und
 R^6 für Alkyl, Halogen, Halogenalkyl, Alkoxy, Halogenalkoxy, Alkylthio oder Halogenalkylthio steht.
- 15 Man erhält die Phenyliminomethyl-harnstoffe der Formel (I), wenn man substituierte Phenyl-formamidine der Formel



in welcher die Reste R^1 bis R^4 die oben angegebene Bedeutung haben,

mit substituierten Phenyl-isocyanaten der Formel



in welcher die Reste R^5 und R^6 die oben angegebene Bedeutung haben,

gegebenenfalls in Gegenwart eines inerten Verdünnungsmittels umgesetzt.

- 10 Die neuen Verbindungen der Formel (I) zeichnen sich durch hohe Wirksamkeit gegen pflanzenschädigende Bakterien aus und sind daher als Pflanzenschutzmittel von Interesse.

Überraschenderweise zeigen die erfindungsgemäßen Phenyliminomethyl-harnstoffe (I) eine erheblich höhere bakterizide

- 15 Wirkung als die aus dem Stand der Technik bekannten Verbindungen analoger Struktur und/oder gleicher Wirkungsrichtung.

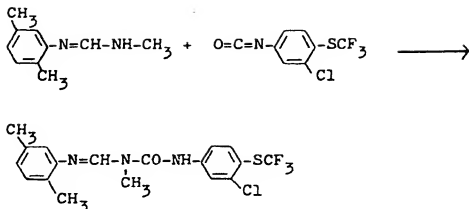
Die Erfindung betrifft vorzugsweise Verbindungen der Formel (I), in welcher

- 5 R^1 für Trifluormethyl und - mit der Maßgabe, daß R^3 für Wasserstoff steht - auch für geradkettiges oder verzweigtes Alkyl mit 1 bis 4 Kohlenstoffatomen, wie insbesondere für Methyl, oder für Chlor oder Brom steht,
- 10 R^2 für Wasserstoff oder zusammen mit R^1 für geradkettiges α, ω -Alkandiy l mit 2 bis 6 Kohlenstoffatomen, das heißt somit für die Gruppe $-(CH_2)_n-$ steht, wobei der Index n für ganze Zahlen von 2 bis 6 und insbesondere für die Zahl 4 steht,
- R^3 für Wasserstoff und - mit der Maßgabe, daß R^1 für Trifluormethyl steht - auch für Chlor oder Brom steht,
- 15 R^4 für Wasserstoff, geradkettiges oder verzweigtes Alkyl mit 1 bis 4 Kohlenstoffatomen wie insbesondere für Methyl, und - mit der Maßgabe, daß R^3 für Wasserstoff steht - auch für Chlor oder Brom steht,
- R^5 für Wasserstoff, Chlor oder Brom steht, und
- 20 R^6 für geradkettiges oder verzweigtes Alkyl mit 1 bis 4 Kohlenstoffatomen, wie insbesondere für Methyl, für Chlor oder Brom, geradkettiges oder verzweigtes Alkoxy oder Alkylthio mit jeweils 1 bis 4 Kohlen-

stoffatomen, insbesondere mit jeweils 1 bis 2 Kohlenstoffatomen, oder für Fluoralkoxy-, Chlorfluoralkoxy, Fluoralkylthio oder Chlorfluoralkylthio mit jeweils 1 oder 2 Kohlenstoffatomen steht.

- 5 Im einzelnen seien hier die folgenden wichtigen Verbindungen aufgezählt: von praktischem Interesse sind insbesondere der N-(2,5-Dichlorphenylimino-methyl)-N-methyl-N'-(3-chloro-4-methyl-phenyl)-harnstoff und der N-(2-Trifluormethyl-4-chlorophenylimino-methyl)-N-methyl-N'-(3-chloro-4-trifluormethyl-phenyl)-harnstoff, ferner noch
- 10 der N-(2-Chloro-5-methyl-phenylimino-methyl)-N-methyl-N'-(4-äthoxyphenyl)-harnstoff, N-(2-Chloro-5-methyl-phenylimino-methyl)-N-methyl-N'-(3-chloro-4-methyl-phenyl)-harnstoff, N-(2-Methyl-phenylimino-methyl)-N-methyl-N'-(3-chloro-4-methyl-phenyl)-harnstoff, N-(Tetrahydronaphthyl-
- 15 imino-methyl)-N-methyl-N'-(3,4-dichlorphenyl)-harnstoff, N-(2,5-Dichloro-phenylimino-methyl)-N-methyl-N'-(3-chloro-4-difluorchloromethylthio-phenyl)-harnstoff und der N-(2,5-Dichloro-phenylimino-methyl)-N-methyl-N'-(3-chloro-4-trifluormethoxy-phenyl)-harnstoff.
- 20

Verwendet man beispielsweise N-(2,5-Dimethyl-phenyl)-N'-methyl-formamidin und 3-Chloro-4-trifluormethyl-thio-phenylisocyanat als Ausgangsstoffe, so kann der Reaktionsablauf durch das folgende Formelschema skizziert werden:



Die als Ausgangsstoffe zu verwendenden Phenyl-formamidine sind durch die Formel (II) definiert.

- Vorzugsweise haben darin R^1 , R^2 , R^3 und R^4 die bei der Definition der Reste R^1 bis R^4 in Formel (I) als bevorzugt angegebene Bedeutung.

Als Beispiele seien genannt:

- N-(2-Trifluormethyl-phenyl)-, N-(4-Chloro-2-trifluormethyl-phenyl)-, N-(2-Methyl-phenyl)-, N-(2,5-Dimethyl-phenyl)-, N-(5-Chloro-2-methyl-phenyl)-, N-(2-Chloro-phenyl)-, N-(2,5-Dichloro-phenyl)-, N-(2-Chloro-5-methyl-phenyl)-, N-(2-Bromo-phenyl)- und N-[1-(5,6,7,8-Tetrahydro)-naphthyl]-N'-methyl-formamidin.

- Die Ausgangsverbindungen der Formel (II) sind bekannt oder können analog bekannten Verfahren hergestellt werden (vergleiche DE-OS 2 751 317). So erhält man beispielsweise N-(2,5-Dichloro-phenyl)-N'-methyl-formamidin durch Umsetzung von 2,5-Dichloranilin mit N-Methyl-formamid in Gegenwart von Phosphoroxychlorid bei Temperaturen zwischen 10 und 60°C. Zur Aufarbeitung wird das Reaktionsgemisch mit Wasser verdünnt, mit Natronlauge alkalisch gestellt und das Produkt durch Filtration isoliert.

- Die weiter als Ausgangsstoffe zu verwendenden Phenyl-isocyanate sind durch Formel (II) definiert. Darin stehen vorzugsweise R^5 und R^6 für diejenigen Substituenten, welche bei der Definition der Reste R^5 und R^6 in Formel
- 5 (I) als bevorzugt genannt sind.

- Als Beispiele seien im einzelnen genannt:
- 3-Bromo-, 4-Bromo-, 3-Chloro-, 4-Chloro-, 3,4-Dichloro-, 4-Methyl-, 3-Chloro-4-methyl-, 4-Trifluormethyl-, 3-Chloro-4-trifluormethyl-, 4-Methoxy-, 4-Äthoxy-, 4-Methylthio-,
- 10 4-Trifluormethoxy-, 3-Chloro-4-trifluormethoxy-, 4-(1,2,2-Trifluoräthoxy)-, 4-Trifluormethylthio-, 3-Chloro-4-trifluormethylthio-, 4-Chlordifluormethylthio- und 3-Chloro-4-chlordifluormethylthio-phenylisocyanat.

- Die Phenylisocyanate der Formel (III) sind bekannt oder
- 15 können nach literaturbekannten Methoden, beispielsweise durch Umsetzung der entsprechenden Anilinderivate mit Phosgen, hergestellt werden (vergleiche Houben-Weyl, Methoden der organischen Chemie, 4. Aufl., Band 8, S. 120, Georg-Thieme-Verlag, Stuttgart 1952).

- 20 Das Verfahren zur Herstellung der erfindungsgemäßen Phenyliminomethyl-harnstoffe (I) wird bevorzugt unter Verwendung geeigneter Lösungs- oder Verdünnungsmittel durchgeführt. Als solche kommen praktisch alle inerten organischen Solventien infrage. Hierzu gehören insbesondere ali-
- 25 phatische und aromatische, gegebenenfalls chlorierte Kohlenwasserstoffe, wie Benzin, Benzol, Toluol, Xylol, Methylenchlorid, Chloroform, Tetrachlorkohlenstoff, Chlorbenzol

und o-Dichlorbenzol, Äther wie Diäthyl- und Dibutyläther, Tetrahydrofuran und Dioxan, Ketone wie Aceton, Methyläthyl-, Methylisopropyl- und Methylisobutylketon sowie Nitrile wie Acetonitril und Propionitril.

- 5 Die Reaktionstemperatur kann innerhalb eines größeren Bereichs variiert werden. Im allgemeinen arbeitet man zwischen 0 und 80°C, vorzugsweise bei 10 bis 50°C.

Das erfindungsgemäße Verfahren wird im allgemeinen bei Normaldruck durchgeführt.

- 10 Zur Durchführung des erfindungsgemäßen Verfahrens werden die Ausgangsstoffe gewöhnlich in äquimolaren Mengen eingesetzt. Ein Überschuß der einen oder anderen Reaktionskomponente bringt keine wesentlichen Vorteile. Die Umsetzung wird im allgemeinen in einem geeigneten Verdünnungsmittel
15 durchgeführt und das Reaktionsgemisch wird mehrere Stunden bei der erforderlichen Temperatur gerührt.

- Zur Aufarbeitung wird filtriert, das Lösungsmittel abdestilliert und das als Rückstand verbleibende Rohprodukt gegebenenfalls durch Umkristallisation gereinigt. Die neuen
20 Produkte werden durch ihren Schmelzpunkt charakterisiert.

- Die erfindungsgemäßen Wirkstoffe weisen eine starke mikrobizide Wirkung auf und können zur Bekämpfung von unerwünschten Mikroorganismen praktisch eingesetzt werden. Die Wirkstoffe sind für den Gebrauch als Pflanzen-
25 schutzmittel geeignet.



Bakterizide Mittel werden im Pflanzenschutz zur Bekämpfung von Pseudomonadaceae, Rhizobiaceae, Enterobacteriaceae, Corynebacteriaceae und Streptomycetaceae eingesetzt.

- 5 Die gute Pflanzenverträglichkeit der Wirkstoffe in den zur Bekämpfung von Pflanzenkrankheiten notwendigen Konzentrationen erlaubt eine Behandlung von oberirdischen Pflanzenteilen, von Pflanz- und Saatgut, und des Bodens.

- 10 Die Wirkstoffe können in die üblichen Formulierungen übergeführt werden, wie Lösungen, Emulsionen, Suspensionen, Pulver, Schäume, Pasten, Granulate, Aerosole, Wirkstoff-imprägnierte Natur- und synthetische Stoffe, Feinstverkapselungen in polymeren Stoffen und in Hüllmassen für Saatgut, ferner in Formulierungen mit Brennsätzen, wie Räucherpatronen, -dosen, -spiralen u.ä., sowie ULV-Kalt- und Warmnebel-Formulierungen.

- 20 Diese Formulierungen werden in bekannter Weise hergestellt, z.B. durch Vermischen der Wirkstoffe mit Streckmitteln, also flüssigen Lösungsmitteln, unter Druck stehenden verflüssigten Gasen und/oder festen Trägerstoffen, gegebenenfalls unter Verwendung von oberflächenaktiven Mitteln, also Emulgiermitteln und/oder Dispergiermitteln und/oder schaumerzeugenden Mitteln. Im Falle der Benutzung von Wasser als Streckmittel können z.B. auch organische Lösungsmittel als Hilfslösungsmittel verwendet werden. Als flüssige Lösungsmittel kommen im wesentlichen in Frage: Aromaten, wie Xylol, Toluol, oder Alkyl-naphthaline, chlorierte Aromaten oder chlorierte aliphatische Kohlenwasserstoffe, wie Chlorbenzole, Chloräthylene oder Methylen-

- chlorid, aliphatische Kohlenwasserstoffe, wie Cyclohexan oder Paraffine, z.B. Erdölfraktionen, Alkohole, wie Butanol oder Glycol sowie deren Äther und Ester, Ketone, wie Aceton, Methyläthylketon, Methylisobutylketon oder Cyclohexanon,
- 5 stark polare Lösungsmittel, wie Dimethylformamid und Dimethylsulfoxid, sowie Wasser; mit verflüssigten gasförmigen Streckmitteln oder Trägerstoffen sind solche Flüssigkeiten gemeint, welche bei normaler Temperatur und unter Normaldruck gasförmig sind, z.B. Aerosol-Treibgas, wie
- 10 Halogenkohlenwasserstoffe sowie Butan, Propan, Stickstoff und Kohlendioxid; als feste Trägerstoffe kommen in Frage: z.B. natürliche Gesteinsmehle, wie Kaoline, Tonerden, Talkum, Kreide, Quarz, Attapulgit, Montmorillonit oder Diatomeenerde und synthetische Gesteinsmehle, wie hochdisperse Kiesel-
- 15 säure, Aluminiumoxid und Silikate; als feste Trägerstoffe für Granulate kommen in Frage: z.B. gebrochene und fraktionierte natürliche Gesteine wie Calcit, Marmor, Bims, Sepiolith, Dolomit sowie synthetische Granulate aus anorganischen und organischen Mehlen sowie Granulate aus
- 20 organischem Material wie Sägemehl, Kokosnußschalen, Maiskolben und Tabakstengel; als Emulgier- und/oder schaumzeugende Mittel kommen in Frage: z.B. nichtionogene und anionische Emulgatoren, wie Polyoxyäthylen-Fettsäure-Ester, Polyoxyäthylen-Fettalkohol-Äther, z.B. Alkylaryl-
- 25 polyglykol-äther, Alkylsulfonate, Alkylsulfate, Arylsulfonate sowie Eiweißhydrolysate; als Dispergiermittel kommen in Frage: z.B. Lignin-Sulfitablaugen und Methylcellulose.

- Es können in den Formulierungen Haftmittel wie Carboxy-
- 30 methylcellulose, natürliche und synthetische pulverige,

körnige oder latexförmige Polymere verwendet werden, wie Gummiarabicum, Polyvinylalkohol, Polyvinylacetat.

Es können Farbstoffe wie anorganische Pigmente, z.B. Eisenoxid, Titanoxid, Ferrocyanblau und organische Farbstoffe, wie Alizarin-, Azol-Metallphthalocyaninfarbstoffe und Spurennährstoffe wie Salze von Eisen, Mangan, Bor, Kupfer, Kobalt, Molybdän und Zink verwendet werden.

Die Formulierungen enthalten im allgemeinen zwischen 0,1 und 95 Gewichtsprozent Wirkstoff, vorzugsweise zwischen 0,5 und 90 %.

Die erfindungsgemäßen Wirkstoffe können in den Formulierungen oder in den verschiedenen Anwendungsformen in Mischung mit anderen bekannten Wirkstoffen vorliegen, wie Fungiziden, Bakteriziden, Insektiziden, Akariziden, Nematiziden, Herbiziden, Schutzstoffen gegen Vogelfraß, Wuchsstoffen, Pflanzennährstoffen und Bodenstrukturverbesserungsmitteln.

Die Wirkstoffe können als solche, in Form ihrer Formulierungen oder der daraus durch weiteres Verdünnen bereiteten Anwendungsformen, wie gebrauchsfertige Lösungen, Emulsionen, Suspensionen, Pulver, Pasten und Granulate angewendet werden. Die Anwendung geschieht in üblicher Weise, z.B. durch Gießen, Tauchen, Spritzen, Sprühen, Vernebeln, Verdampfen, Injizieren, Verschlämmen, Verstreichen, Stäuben, Streuen, Trockenbeizen, Feuchtbeizen, Naßbeizen, Schlämmbeizen oder Inkrustieren.

Bei der Behandlung von Pflanzenteilen können die Wirkstoffkonzentrationen in den Anwendungsformen in einem größeren Bereich variiert werden. Sie liegen im allgemeinen zwischen 1 und 0,0001 Gew.-%, vorzugsweise zwischen 0,5 und 0,001 %.

5

Bei der Saatgutbehandlung werden im allgemeinen Wirkstoffmengen von 0,001 bis 50 g je Kilogramm Saatgut, vorzugsweise 0,01 bis 10 g, benötigt.

Bei Behandlung des Bodens sind Wirkstoffkonzentrationen von 0,00001 bis 0,1 Gew.-%, vorzugsweise von 0,0001 bis 0,02 %, am Wirkungsort erforderlich.

10

Beispiel

Bakterien-Test / *Xanthomonas oryzae*

Lösungsmittel:	11,75 Gewichtsteile Aceton
Dispergiermittel:	0,75 Gewichtsteile Alkylarylpoly- glykoläther
Wasser:	987,50 Gewichtsteile
andere Zusätze:	- Gewichtsteile -

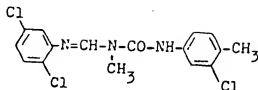
Man vermischt die für die gewünschte Wirkstoffkonzentration in der Spritzflüssigkeit nötige Wirkstoffmenge mit der angegebenen Menge des Lösungsmittels und des Dispergiermittels und verdünnt das Konzentrat mit der angegebenen Menge Wasser.

Mit der Spritzflüssigkeit bespritzt man 30 etwa 40 Tage alte Reispflanzen bis zur Tropfnässe. Die Pflanzen verbleiben bis zum Abtrocknen in einem Gewächshaus bei Temperaturen von 22 bis 24°C und einer relativen Luftfeuchtigkeit von etwa 70 %. Danach werden Nadeln in eine wässrige Bakteriensuspension von *Xanthomonas oryzae* getaucht und die Pflanzen durch Anstechen der Blätter inokuliert. Die Pflanzen stehen nach der Inokulation 24 Stunden bei 100 % relativer Luftfeuchtigkeit und danach in einem Raum bei 26 bis 28°C und 80 % relativer Luftfeuchtigkeit. 10 Tage nach der Inokulation wird der Befall bei allen durch Stich verletzten, inokulierten Blätter von vorher mit Präparat behandelten Pflanzen in Wertzahlen von 1 bis 9 ausgewertet. 1 bedeutet 100 %ige Wirkung, 3 = gute Wirkung, 5 = mäßige Wirkung und 9 = keine Wirkung.

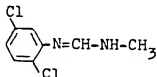
Bei diesem Test zeigen z.B. die folgenden Verbindungen eine überlegene Wirkung gegenüber dem Stand der Technik:

Verbindungen gemäß Herstellungsbeispielen 1, 2, 3, 6, 4, 5, 7, 8.

5

HerstellungsbeispieleBeispiel 1:

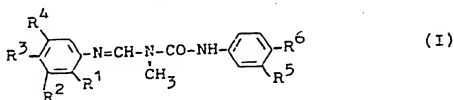
- 17 g (0,1 Mol) 3-Chloro-4-methyl-phenylisocyanat werden zu einer Lösung von 20 g (0,1 Mol) N-(2,5-Di-chloro-phenyl)-N'-methyl-formamidin in 200 ml Methylen-
 5 chlorid gegeben. Das Reaktionsgemisch wird dann 15 Stunden bei 15 bis 25°C gerührt, filtriert, und durch Einengen im Vakuum vom Lösungsmittel befreit. Nach Umkristallisieren aus iso-Propanol erhält man 32 g (86 % der Theorie) N-(2,5-Dichloro-phenyliminomethyl)-
 10 N-methyl-N'-(3-chloro-4-methyl-phenyl)-harnstoff mit einem Schmelzpunkt von 160°C.



Vorprodukt:

- 93 ml Phosphoroxychlorid werden zu einer auf 50°C erwärmten
 15 Mischung aus 162 g (1 Mol) 2,5-Dichloroanilin und 500 ml N-Methyl-formamid gegeben. Das Reaktionsgemisch wird 15 Stunden bei 15 bis 25°C gerührt, dann mit Wasser verdünnt und mit Natronlauge alkalisch gestellt. Das hierbei ausgefallene Produkt wird durch Vakuumfiltration isoliert
 20 und durch Umkristallisation aus iso-Propanol gereinigt. Man erhält 94 g (46% der Theorie) N-(2,5-Dichloro-phenyl)-N'-methyl-formamidin mit einem Schmelzpunkt von 91°C.

Analog Beispiel 1 können die folgenden Verbindungen der Formel (I) hergestellt werden:



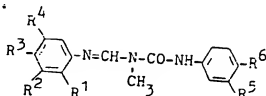
Bei- spiel Nr.:	R ¹	R ²	R ³	R ⁴	R ⁵	R ⁶	Schmelz- punkt (°C)	Ausbeute (% der Theorie)
2	CF ₃	H	Cl	H	Cl	CF ₃	141	61
3	Cl	H	H	CH ₃	H	OC ₂ H ₅	45	84
4	Cl	H	H	CH ₃	Cl	CH ₃	144	56
5	CH ₃	H	H	H	Cl	CH ₃	92	70
6	-(CH ₂) ₄ -	H	H	H	Cl	Cl	115	74
7	Cl	H	H	Cl	Cl	SCF ₂ Cl	140	68
8	Cl	H	H	Cl	Cl	OCF ₃	113	63
9	Cl	H	H	H	H	OC ₂ H ₅	148	78
10	Cl	H	H	H	Cl	Cl	111	76
11	Cl	H	H	H	H	Cl	84	77
12	Cl	H	H	H	Cl	CH ₃	120	74
13	CF ₃	H	Cl	H	Cl	CH ₃	145	88

Re- spiel Nr.	R ¹	R ²	R ³	R ⁴	R ⁵	R ⁶	Schmelz- punkt (°C)	Ausbeute (% der Theorie)
14	CF ₃	H	Cl	H	Cl	Cl	151	87
15	CF ₃	H	Cl	H	H	Cl	128	72
16	CF ₃	H	Cl	H	H	OC ₂ H ₅	138	83
17	CH ₃	H	H	Cl	Cl	Cl	153	52
18	CH ₃	H	H	Cl	H	Cl	140	79
19	CH ₃	H	H	Cl	H	OC ₂ H ₅	102	79
20	CH ₃	H	H	Cl	Cl	CH ₃	129	76
21	CF ₃	H	Cl	H	H	CH ₃	132	78
22	CH ₃	H	H	Cl	H	CH ₃	130	66
23	Cl	H	H	Cl	H	OC ₂ H ₅	136	46
24	CH ₃	H	H	Cl	H	OC ₂ H ₅	102	79
25	CH ₃	H	H	Cl	Cl	CH ₃	126	69
26	CH ₃	H	H	Cl	Cl	CF ₃	132	73
27	CH ₃	H	H	Cl	H	CH ₃	131	86
28	Cl	H	H	Cl	Cl	CF ₃	148	79
29	Cl	H	H	Cl	H	CH ₃	163	57
30	Cl	H	H	Cl	H	Cl	174	67
31	CF ₃	H	Cl	H	H	OC ₂ H ₅	136	67
32	CF ₃	H	Cl	H	Cl	Cl	153	55
33	Cl	H	H	CH ₃ Cl	Cl		118	81

Bei- spiel Nr.	R ¹	R ²	R ³	R ⁴	R ⁵	R ⁶	Schmelz- punkt (°C)	Ausbeute (% der Theorie)
34	Cl	H	H	CH ₃	H	CH ₃	120	75
35	Cl	H	H	CH ₃	H	Cl	151	54
36	CH ₃	H	H	H	H	OC ₂ H ₅	127	76
37	CH ₃	H	H	H	Cl	Cl	81	66
38	CH ₃	H	H	H	H	CH ₃	51	69
39	CH ₃	H	H	H	H	Cl	81	90
40	CH ₃	H	H	H	Cl	CF ₃	81	74
41	-(CH ₂) ₄ -	H	H	H	Cl	CF ₃	149	64
42	-(CH ₂) ₄ -	H	H	H	H	OCF ₃	81	68
43	-(CH ₂) ₄ -	H	H	H	Cl	OCF ₃	90	68
44	-(CH ₂) ₄ -	H	H	H	Cl	SCF ₂ Cl	100	69
45	Cl	H	H	Cl	H	CF ₃	180	80
46	Cl	H	H	Cl	H	OCF ₃	131	60
47	CF ₃	H	Cl	H	Cl	OCF ₃	133	70
48	CF ₃	H	Cl	H	H	CF ₃	116	68
49	CF ₃	H	Cl	H	H	OCF ₃	139	52
50	-(CH ₂) ₄ -	H	H	H	Cl	CH ₃	115	65
51	-(CH ₂) ₄ -	H	H	H	H	Cl	112	62
52	-(CH ₂) ₄ -	H	H	H	H	CH ₃	147	65

Patentansprüche

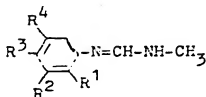
- 1) Phenyliminomethyl-harnstoffe der allgemeinen Formel



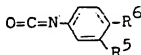
5 in welcher

- R¹ für Halogenalkyl und - mit der Maßgabe, daß R³ für Wasserstoff steht - auch für Alkyl oder Halogen steht,
 R² für Wasserstoff oder zusammen mit R¹ für Alkandiyl steht,
 10 R³ für Wasserstoff und - mit der Maßgabe, daß R¹ für Halogenalkyl steht - auch für Halogen steht,
 R⁴ für Wasserstoff, Alkyl und - mit der Maßgabe, daß R³ für Wasserstoff steht - auch für Halogen steht,
 15 R⁵ für Wasserstoff oder Halogen steht, und
 R⁶ für Alkyl, Halogen, Halogenalkyl, Alkoxy, Halogenalkoxy, Alkylthio oder Halogenalkylthio steht.
- 20 2) Verfahren zur Herstellung von Phenyliminomethyl-harnstoffen, dadurch gekennzeichnet, daß man

substituierte Phenyl-formamidine der Formel



in welcher die Reste R^1 bis R^4 die in Anspruch 1
angegebene Bedeutung haben,
mit substituierten Phenyl-isocyanaten der Formel



in welcher die Reste R^5 und R^6 die in Anspruch 1
angegebene Bedeutung haben,
gegebenenfalls in Gegenwart eines inerten Ver-
dünnungsmittels umgesetzt.

- 3) Bakterizide Mittel, gekennzeichnet durch einen
Gehalt an mindestens einem Phenyliminomethyl-
harnstoff gemäß Anspruch 1.
- 4) Verfahren zur Bekämpfung von Bakterien, dadurch
gekennzeichnet, daß man Phenyliminomethyl-harn-
stoffe gemäß Anspruch 1 auf Bakterien oder ihren
Lebensraum einwirken läßt.
- 5) Verwendung von Phenyliminomethyl-harnstoffen
gemäß Anspruch 1 zur Bekämpfung von Bakterien.

- 6) Verfahren zur Herstellung von bakteriziden Mitteln, dadurch gekennzeichnet, daß man Phenyliminomethyl-harnstoffe gemäß Anspruch 1 mit Streckmitteln und/oder oberflächenaktiven Mitteln vermischt.
- 5

This Page is inserted by IFW Indexing and Scanning Operations and is not part of the Official Record

BEST AVAILABLE IMAGES

Defective images within this document are accurate representations of the original documents submitted by the applicant.

Defects in the images include but are not limited to the items checked:

- ☐ BLACK BORDERS
- ☐ IMAGE CUT OFF AT TOP, BOTTOM OR SIDES
- ☐ FADED TEXT OR DRAWING
- ☐ BLURED OR ILLEGIBLE TEXT OR DRAWING
- ☐ SKEWED/SLANTED IMAGES
- ☐ COLORED OR BLACK AND WHITE PHOTOGRAPHS
- ☐ GRAY SCALE DOCUMENTS
- ☐ LINES OR MARKS ON ORIGINAL DOCUMENT
- ☐ REFERENCE(S) OR EXHIBIT(S) SUBMITTED ARE POOR QUALITY
- ☐ OTHER: _____

IMAGES ARE BEST AVAILABLE COPY.

As rescanning documents *will not* correct images problems checked, please do not report the problems to the IFW Image Problem Mailbox

This Page Blank (uspto)